

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-373786

(43)Date of publication of application : 26.12.2002

(51)Int.Cl.

H05B 33/14

H05B 33/22

(21)Application number : 2001-181159 (71)Applicant : CANON INC

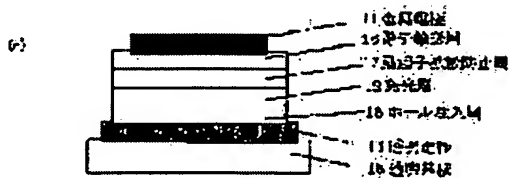
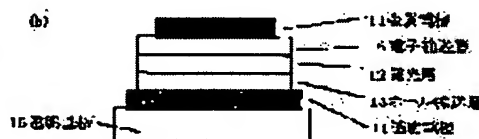
(22)Date of filing : 15.06.2001 (72)Inventor : TAKIGUCHI TAKAO
TSUBOYAMA AKIRA
OKADA SHINJIRO
MIURA KIYOSHI
MORIYAMA TAKASHI
KAMATANI ATSUSHI
KOGORI MANABU

(54) LIGHT-EMITTING DEVICE AND DISPLAY DEVICE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a light-emitting device having high initial brightness and keeping low deterioration in brightness.

SOLUTION: This light-emitting device has at least one organic compound layer, and has at least one layer of an organic compound in which the content of impurities produced by cross-coupling reaction is 0.5 mass % or less.



* NOTICES *

JP0 and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1]A light emitting device, wherein content of an impurity which may be produced by a cross coupling reaction has further at least an organic compound layer which is below 0.5 mass % in a light emitting device which has much more organic compound layer at least.

[Claim 2]The light emitting device according to claim 1, wherein content of said impurity is below 0.3 mass %.

[Claim 3]The light emitting device according to claim 1, wherein content of said impurity is below 0.1 mass %.

[Claim 4]The light emitting device according to any one of claims 1 to 3, wherein an organic compound layer containing said impurity is a luminous layer.

[Claim 5]The light emitting device according to any one of claims 1 to 3, wherein an organic compound layer containing said impurity is a hole transporting bed.

[Claim 6]The light emitting device according to any one of claims 1 to 3, wherein an organic compound layer containing said impurity is an electron transport layer.

[Claim 7]The light emitting device according to any one of claims 1 to 3, wherein an organic compound layer containing said impurity is a hole pouring layer.

[Claim 8]The light emitting device according to any one of claims 1 to 3, wherein an organic compound layer containing said impurity is an exciton diffusion prevention layer.

[Claim 9]The light emitting device according to any one of claims 1 to 8, wherein said light emitting device is a light emitting device using phosphorescence luminescence.

[Claim 10]The light emitting device according to any one of claims 1 to 9 being electroluminescence devices which emit light when said organic compound layer is pinched by inter-electrode [of a couple] and impresses voltage to this inter-electrode one.

[Claim 11]A display having the light emitting device according to any one of claims 1 to 10 as a display device.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]This invention relates to the light emitting device which used the organic compound.

It is related with an organic electroluminescence element with high efficiency stable by reducing a ** Li student ***** impurity for the cross coupling reaction in an organic compound layer in more detail (organic EL device).

[0002]

[Description of the Prior Art]As for the organic EL device, the application study is energetically performed as high speed response nature or an efficient light emitting device. the -- being fundamental -- composition -- drawing 1 -- (-- a --) - (-- b --) -- having been shown -- [-- for example, -- Macromol . -- Symp . -- 125 -- one - 48 (1997) -- reference --] .

[0003]As shown in drawing 1, generally an organic EL device comprises a two or more layers organic layer layer between the transparent electrode 14 and the metal electrode 11 on the transparent substrate 15.

[0004]An organic layer consists of the luminous layer 12 and the hole transporting bed 13 in drawing 1 (a). ITO with a big work function, etc. are used as the transparent electrode 14, and the good hole pouring characteristic from the transparent electrode 14 to the hole transporting bed 13 is given. The good electron injection nature to an organic layer is given using the small metallic material of work functions, such as an alloy using aluminum, magnesium, or them as the metal electrode 11. 50-200-nm thickness is used for these electrodes.

[0005]The aluminum quinolinol complex (Alq3 which shows the example of representation to ** 1) etc. which have electron transport property and a luminescent characteristic are used for the luminous layer 12. The material which has electron-donative [, such as a biphenyl diamine derivative (alpha-NPD which shows the example of representation to ** 1),], for example is used for the hole transporting bed 13.

[0006]When an electric field is impressed so that the element which constituted more than shows a rectifying action, and it may become the negative pole about the metal electrode 11 and it may become the anode about the transparent electrode 14, an electron is poured into the luminous layer 12 from the metal electrode 11, and a hole is poured in from the transparent electrode 15.

[0007]Within the luminous layer 12, an exciton arises by recombination and the hole and electron which were poured in emit light. At this time, the role of an electronic blocking layer is played, the recombination efficiency of 12/of luminous layer hole transporting bed 13 interface increases, and luminous efficiency goes up the hole transporting bed 13.

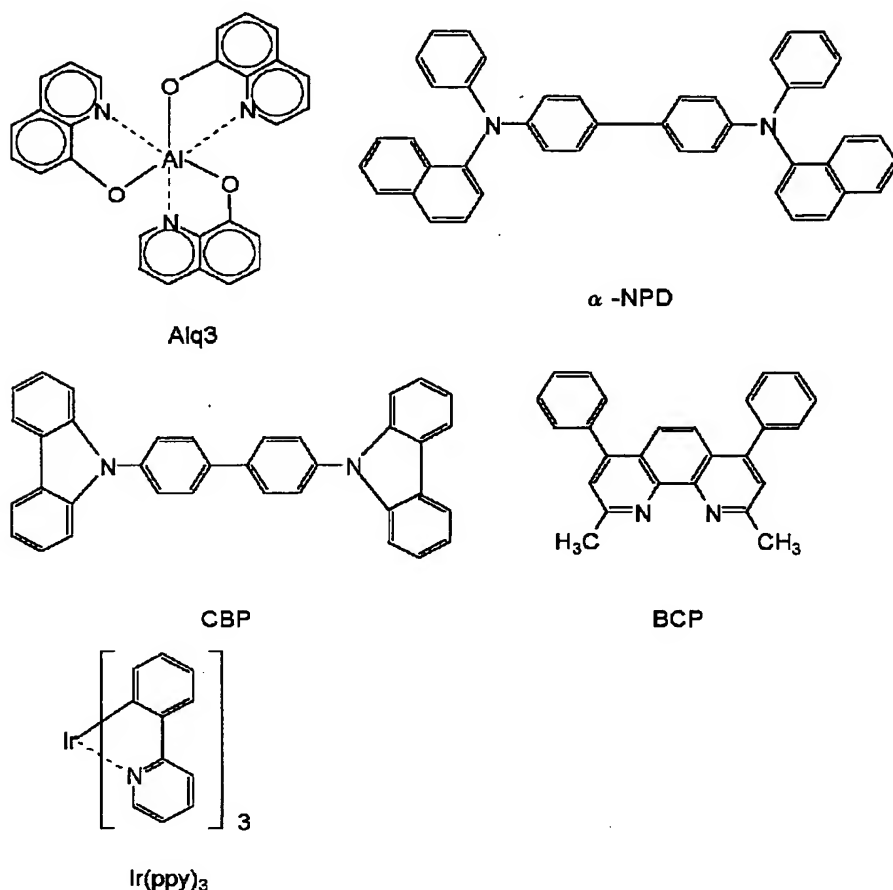
[0008]In drawing 1 (b), the electron transport layer 16 is formed between the metal electrode 11 of drawing 1 (a), and the luminous layer 12. Luminescence, and an electron and hole transportation can be separated and efficient luminescence can be performed by having more effective career blocking composition. As the electron transport layer 16, an oxadiazole derivative etc. can be used, for example.

[0009]Fluorescence in case luminescence generally used for the organic EL device until now will be from the singlet exciton of the molecule of a luminescence center in a ground state is taken out. Examination of the element which, on the other hand, does not use the firefly luminescence which went via the singlet exciton, but uses phosphorescence luminescence which went via the triplet exciton is made. the typical literature announced -- literature 1:Improved energy transfer in electrophosphorescent device (D. -- F.O'Brien et al.) Applied Physics Letters Vol 74, No3 p422 (1999), Literature 2:Very high-efficiencygreen organic light-emitting devicesbased on electrophosphorescence (M. -- A.Baldo et al.) It is Applied Physics Letters Vol 75 and No1 p4 (1999).

[0010]In these articles, 4 lamination of the organic layer shown in drawing 1 (c) is mainly used. It consists of the hole transporting bed 13 from the anode side, the luminous layer 12, the exciton diffusion prevention layer 17, and the electron transport layer 16. The material used is the carrier transport material and phosphorescence luminescence material which are shown in ** 1. The abbreviation of each material is as follows.

Alq3:.. Aluminum quinolinol complex alpha-NPD :. N4, N4'-Di-naphthalen-1-yl-N4, and N4 -- '-diphenyl-biphenyl-4 and 4' - diamineCBP:4 and 4' - N, N' - dicarbazole-biphenylBCP:2 and 9-dimethyl-4, 7-diphenyl-1,10-phenanthrolinePtOEP:platinum-octaethyl porphyrin-complex Ir(ppy)₃: Iridium phenyl pyrimidine complex [0011]

[Formula 1]



[0012]the well head was acquired for the literature 1 and 2 -- Alq3 and the exciton diffusion prevention layer 17 being used with BCP, CBP being made alpha-NPD and the electron transport layer 16 with a host material at the luminous layer 12 at the hole transporting bed 13, and it being about 6% of concentration, and, PtOEP or Ir(ppy)₃ which is phosphorescence luminescence material is mixed and constituted.

[0013]The reason especially the phosphorescence nature luminescent material attracts attention is expectable [high luminous efficiency] theoretically. The exciton by which the reason is generated by career recombination consists of a 1-fold paragraph exciton and a 3-fold paragraph exciton, and the probability is 1:3. Although the old organic EL device had taken out the fluorescence at the time of changing to a ground state from 1-fold paragraph exciton as luminescence, theoretically, the luminescence yield was 25% to the generated number of excitons, and this was a theoretic maximum. However, if the phosphorescence from the exciton generated from 3-fold paragraph is used, one at least 3 times the yield of this is expected theoretically, and if transition by the intersystem crossing to 3-fold paragraph from still higher 1-fold paragraph in energy is taken into consideration, one 4 times the luminescence yield of 100% of this is theoretically expectable.

[0014]Otherwise in the literature which required luminescence from a triplet, JP,11-329739,A (an organic EL device and a manufacturing method for the same), There are JP,11-256148,A (a luminescent material and the organic EL device using this), JP,8-

319482,A (organic electroluminescent element), etc.

[0015]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]The brightness degradation by the energization of the long time of a light emitting device (organic EL device) using the layer which contains an organic compound also in the present is a big problem, and the further improvement is called for. In the organic EL device especially using phosphorescence luminescence, while high luminous efficiency is expected, energization degradation poses a serious problem.

[0016]Then, initial luminance of this invention is high and the brightness degradation by durability aims at providing few light emitting devices and displays.

[0017]

[Means for Solving the Problem]As a result of inquiring wholeheartedly that an aforementioned problem should be solved, this invention persons find out that an impurity originating in a cross coupling reaction influences greatly brightness lowering by initial luminance of an organic EL device, or durability, and came to complete this invention.

[0018]Namely, in a light emitting device which has organic compound layer with light emitting device of this invention much more at least, Below in 0.5 mass %, content of a ** Li student ***** impurity has [below 0.3 mass %] further preferably an organic compound layer which is below 0.1 mass % more preferably at least for a cross coupling reaction.

[0019]it is preferred that an organic compound layer which boils and sets a light emitting device of this invention, and contains said impurity is a luminous layer, a hole transporting bed, an electron transport layer, a hole pouring layer, or an exciton diffusion prevention layer.

[0020]It is preferred that said light emitting device is a light emitting device using phosphorescence luminescence.

[0021]It is preferred that they are electroluminescence devices which emit light when said organic compound layer is pinched by inter-electrode [of a couple] and impresses voltage to this inter-electrode one.

[0022]A display of this invention was provided with the above-mentioned light emitting device as a display device.

[0023]

[Embodiment of the Invention]The light emitting devices of this invention are a light emitting device which has much more organic compound layer at least, and electroluminescence devices which emit light when an organic compound layer is pinched by inter-electrode [of a couple] and impresses voltage to this inter-electrode one preferably. It is not limited especially as lamination of a light emitting device, but composition as shown in drawing 1 is mentioned.

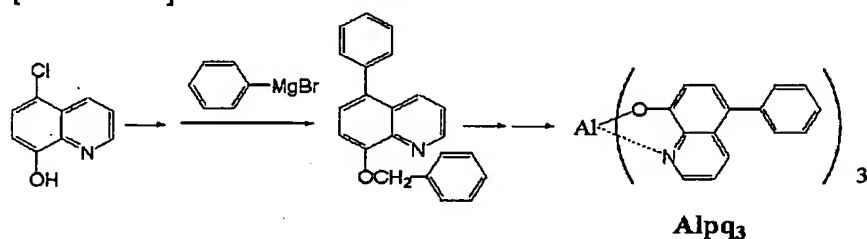
[0024]The light emitting device of this invention has further at least an organic compound layer whose content of a ** Li student ***** impurity is [below 0.5 mass %] below 0.1 mass % more preferably below in 0.3 mass % for a cross coupling reaction. If the content of an impurity is below 0.5 mass %, it excels in endurance and, in the case of the light emitting

device using phosphorescence luminescence, excels also at an initial characteristic.

[0025] Here, the cross coupling reaction in organic synthesis is a reaction which makes a covalent bond generate between different reacting species, and it is distinguished from the gay coupling reaction who makes a covalent bond generate between the same reacting species. The cross coupling reaction of an organic metallic compound and an organic halogenated compound which used transition metal catalysts (Pd, nickel, Cu, Fe, etc.) also among this cross coupling reaction, A Heck reaction, the Suzuki-coupling reaction using an organic boron compound, the amination reaction using a Pd catalyst, the diaryl ether synthetic reaction using a Pd catalyst, etc. are considered variously, and have been the synthetic leading techniques of various organic compounds. Also in the material for organic EL devices, these methods are important synthetic techniques, and the following is mentioned as a synthetic example of publicly known material.

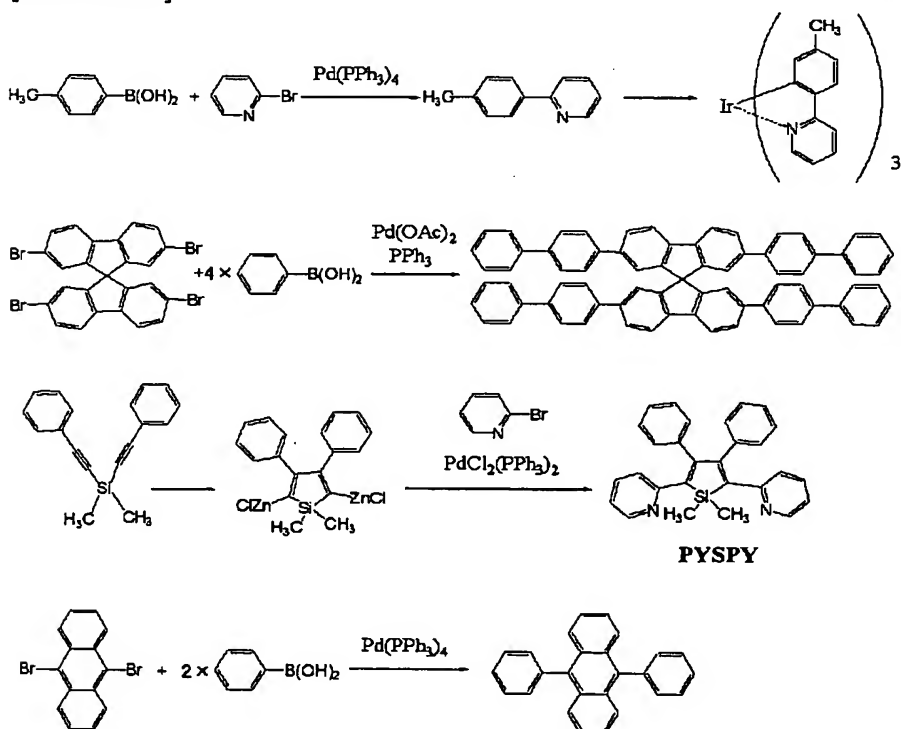
[0026]

[Formula 2]



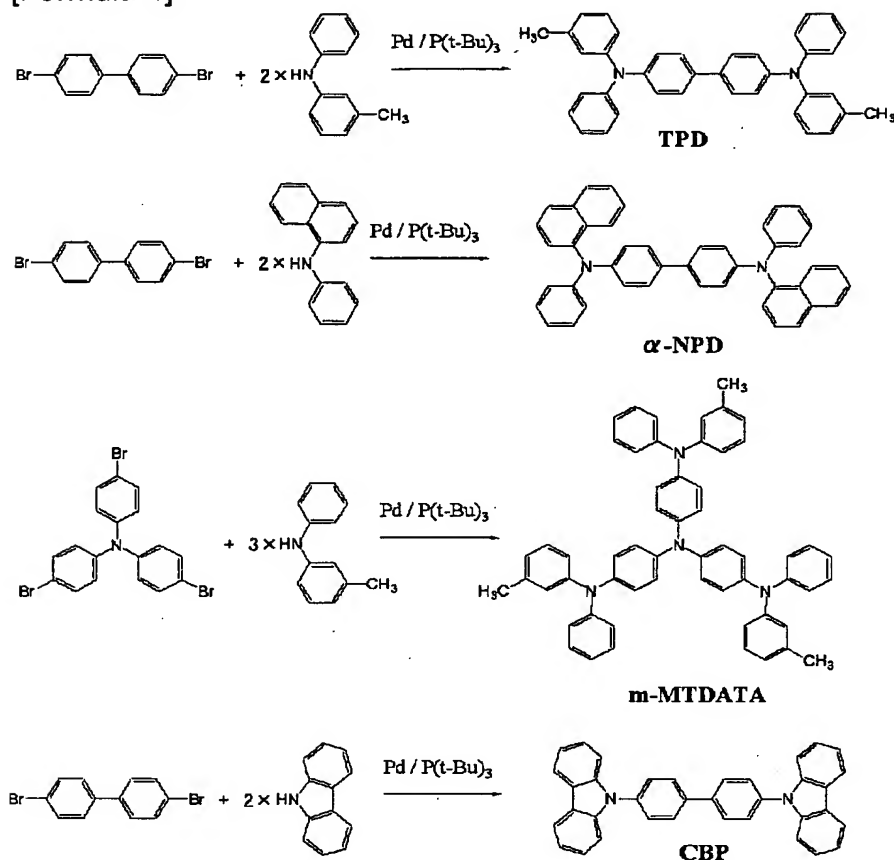
[0027]

[Formula 3]



[0028]

[Formula 4]



[0029]The organic compound containing the metal originating in the gay coupling body combined with the cross coupling reaction between the reacting species same as impurities other than the object which carries out ** Li generation, the thing which the halogen atom and metal atom of the raw material replaced from hydrogen, the used transition metal catalyst, or an organic metallic compound, etc. are mentioned.

[0030]The organic compound layers which contain a ** Li student ***** impurity for a cross coupling reaction may be any of a luminous layer, a hole transporting bed, an electron transport layer, a hole pouring layer, and an exciton diffusion prevention layer, and may be plural among these.

[0031]The light emitting device of efficient and high durability of this invention is applicable to the product which needs [energy saving or high-intensity]. As an application, the light source of a display and a lighting system, or a printer, the back light of a liquid crystal display, etc. can be considered. As a display, energy saving, high visibility, and a lightweight flat-panel display become possible. As a light source of a printer, the laser light source section of the laser beam printer used widely now can be transposed to the light emitting device of this invention. The element which can carry out an address independently is arranged on an array, and image formation is carried out by exposing a request to a photoconductive drum. By using the element of this invention, a device body product can be decreased substantially. About a lighting system or a back light, the energy

saving effect by this invention is expectable.

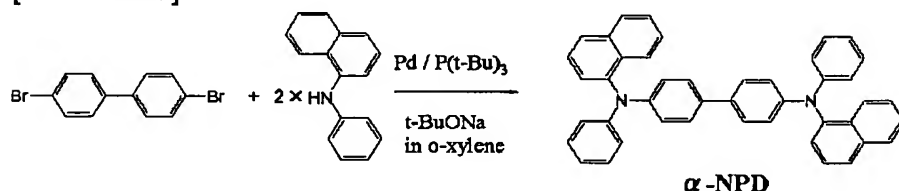
[0032]

[Example] Hereafter, although an example explains this invention, this invention is not limited to these examples.

[0033] <Example 1> Alpha-NPD was compounded by the method of Tetrahedron Lett. shown below, 1998 and 39, and 2367-2370.

[0034]

[Formula 5]



[0035] It checked 2.3 mass % That the biphenyl which is an impurity of cross coupling reaction origin was contained by high performance chromatography in the stage of crude things. By repeating silica gel column chromatography and recrystallization, refining alpha-NPD from which biphenyl is not detected with high performance chromatography was obtained (detection limit 0.05 mass %). The element was created at the process shown below using this alpha-NPD.

[0036] This element is an element two-layer in the organic layer shown in drawing 1 (a). 100-nm ITO (transparent electrode 14) is patterned on a glass substrate (transparent substrate 15), and it was made for the electrode area which counters to become 3-mm². On the ITO board, vacuum deposition according the following organic layers and electrode layers to resistance heating within the vacuum chamber of 10⁻⁴Pa was performed, and continuation film production was carried out.

Organic layer 1 (hole transporting bed 13) (40 nm): Refining alpha-NPD organic layer 2 (luminous layer 12) (30 nm): Alq3 metal-electrode-layer 1 (15 nm): AlLi alloy (1.8 % of the weight of Li content)

Metal-electrode-layer 2 (100 nm): aluminum [0037] The ITO side was used as the anode, the aluminum side was used as the negative pole, the electric field was impressed, voltage was impressed so that it might become the same with each element about a current value, and the temporal change of luminosity was measured. The fixed current amount was made into 70 mA/cm². Since oxygen and water were problems as a cause of element deterioration, in order to remove the factor, the above-mentioned measurement was performed in the dry nitrogen flow after extraction from the vacuum chamber. A result is shown in Table 1.

[0038] By the organic layer 1 of Examples 2-4 and the <comparative example 1,2> example 1, except carrying out vapor codeposition of the biphenyl at a rate shown in Table 1 to refining alpha-NPD, the element was created on the completely same conditions and the temporal change of luminosity was measured. A result is shown in Table 1.

[0039]

[Table 1]

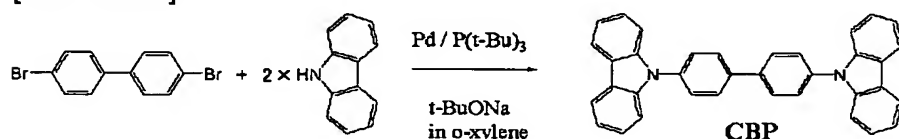
| | ビフェニル含有量 (質量%) | 輝度半減時間 (hrs) |
|-------|-------------------|-----------------|
| 実施例 1 | 0 | 900 |
| 実施例 2 | 0.1 | 810 |
| 実施例 3 | 0.3 | 740 |
| 実施例 4 | 0.5 | 670 |
| 比較例 1 | 1.0 | 310 |
| 比較例 2 | 2.0 | 130 |

[0040]It turned out that it improves further as especially the durable performance of the element improved and it became 0.3 mass % and 0.1 mass %, when the biphenyl content in alpha-NPD was [Table / 1] below 0.5 mass %.

[0041]<Example 5> CBP was compounded by the method of Tetrahedron Lett. shown below, 1998 and 39, and 2367-2370.

[0042]

[Formula 6]



[0043]It checked 3.1 mass % That the biphenyl which is an impurity of cross coupling reaction origin was contained by high performance chromatography in the stage of crude things. By repeating silica gel column chromatography and recrystallization, the refining CBP from which biphenyl is not detected with high performance chromatography was obtained (detection limit 0.05 mass %). The element was created at the process shown below using this CBP.

[0044]The organic layer which shows drawing 1 (b) this element is an element of three layers. 100-nm ITO (transparent electrode 14) is patterned on a glass substrate (transparent substrate 15), and it was made for the electrode area which counters to become 3-mm². On the ITO board, vacuum deposition according the following organic layers and electrode layers to resistance heating within the vacuum chamber of 10⁻⁴Pa was performed, and continuation film production was carried out.
Organic layer 1 (hole transporting bed 13) (40 nm): Refining alpha-NPD organic layer 2 (luminous layer 12)(30 nm):refining CBP:Ir(ppy)₃ of Example 1 (it is 5 % of the weight to the refining CBP)

Organic-layer 3(electron transport layer 16)(30 nm): Alq3 metal-electrode-layer 1(15 nm):AlLi alloy (1.8 % of the weight of Li content)

Metal-electrode-layer 2(100 nm): aluminum [0045]The temporal change of luminosity was measured like Example 1. A result is shown in Table 2.

[0046]By the organic layer 2 of Examples 6-8 and the <comparative example 3 and 4> example 5, except carrying out vapor codeposition of the biphenyl at a rate shown in Table 2 to the refining CBP, the element was created on the completely same conditions and the temporal change of luminosity was measured. A result is shown in Table 2.

[0047]

[Table 2]

| | ビフェニル含有量 (質量%) | 輝度半減時間 (hrs) |
|-------|-------------------|-----------------|
| 実施例 5 | 0 | 1 8 0 |
| 実施例 6 | 0. 1 | 1 6 5 |
| 実施例 7 | 0. 3 | 1 5 5 |
| 実施例 8 | 0. 5 | 1 3 0 |
| 比較例 3 | 1. 0 | 6 0 |
| 比較例 4 | 2. 0 | 3 5 |

[0048]It turned out that it improves further as especially the durable performance of the element improved and it became 0.3 mass % and 0.1 mass %, when the biphenyl content in CBP was [Table / 2] below 0.5 mass %.

[0049]When the initial luminance of the element of Example 8 and the comparative example 3 was measured, the element of Example 8 was clearly higher.

[0050]It became clear that the brightness lowering according [the light emitting device by which the ** Li student ***** impurity is more preferably reduced / below 0.5 mass % / by the cross coupling reaction at below 0.1 mass % below as for 0.3 mass %] to energization is small, and more efficient than the above result.

[0051]

[Effect of the Invention]Above, like explanation, according to this invention, it excels in endurance and the light emitting device and display which maintain a long period high-intensity can be obtained by efficient light. In the case of a phosphorescence light emitting device, an initial characteristic is also improved.

[Translation done.]

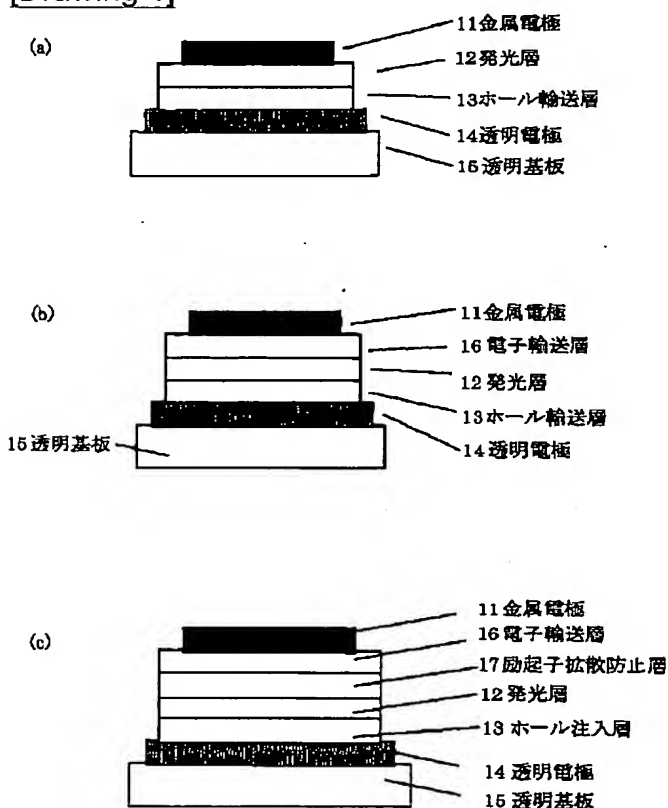
* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DRAWINGS

[Drawing 1]



[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-373786

(P2002-373786A)

(43) 公開日 平成14年12月26日 (2002. 12. 26)

| (51) Int.Cl. ⁷ | 識別記号 | F I | データベース (参考) |
|---------------------------|------|---------------|-------------|
| H 0 5 B 33/14 | | H 0 5 B 33/14 | B 3 K 0 0 7 |
| 33/22 | | 33/22 | B |
| | | | D |

審査請求 未請求 請求項の数11 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願2001-181159(P2001-181159)

(22) 出願日 平成13年6月15日 (2001. 6. 15)

(71) 出願人 000001007

キヤノン株式会社

東京都大田区下丸子3丁目30番2号

(72) 発明者 滝口 隆雄

東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内

(72) 発明者 坪山 明

東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内

(74) 代理人 100096828

弁理士 渡辺 敬介 (外2名)

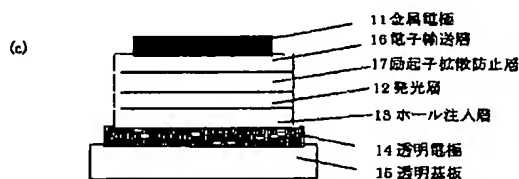
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 発光素子及び表示装置

(57) 【要約】

【課題】 初期輝度が高く、耐久による輝度劣化が少ない発光素子を提供する。

【解決手段】 少なくとも一層の有機化合物層を有する発光素子において、クロスカップリング反応により生じる不純物の含有量が0.5質量%以下である有機化合物層を少なくとも一層有する発光素子。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 少なくとも一層の有機化合物層を有する発光素子において、クロスカップリング反応により生じる不純物の含有量が0.5質量%以下である有機化合物層を少なくとも一層有することを特徴とする発光素子。

【請求項2】 前記不純物の含有量が0.3質量%以下であることを特徴とする請求項1に記載の発光素子。

【請求項3】 前記不純物の含有量が0.1質量%以下であることを特徴とする請求項1に記載の発光素子。

【請求項4】 前記不純物を含有する有機化合物層が発光層であることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の発光素子。

【請求項5】 前記不純物を含有する有機化合物層がホール輸送層であることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の発光素子。

【請求項6】 前記不純物を含有する有機化合物層が電子輸送層であることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の発光素子。

【請求項7】 前記不純物を含有する有機化合物層がホール注入層であることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の発光素子。

【請求項8】 前記不純物を含有する有機化合物層が励起子拡散防止層であることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の発光素子。

【請求項9】 前記発光素子がりん光発光を用いた発光素子であることを特徴とする請求項1～8のいずれかに記載の発光素子。

【請求項10】 前記有機化合物層が、一対の電極間に挟持され、該電極間に電圧を印加することにより発光する電界発光素子であることを特徴とする請求項1～9のいずれかに記載の発光素子。

【請求項11】 請求項1～10のいずれかに記載の発光素子を表示素子として備えたことを特徴とする表示装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、有機化合物を用いた発光素子に関するものであり、さらに詳しくは有機化合物層中のクロスカップリング反応により生じる不純物を低減することによって安定した効率の高い有機エレクトロルミネッセンス素子（有機EL素子）に関するものである。

【0002】

【従来の技術】有機EL素子は、高速応答性や高効率の発光素子として、応用研究が精力的に行われている。その基本的な構成を図1(a)・(b)に示した[例えばMacromol. Symp. 125, 1～48 (1997) 参照]。

【0003】図1に示したように、一般に有機EL素子

は透明基板15上に透明電極14と金属電極11の間に複数層の有機膜層から構成される。

【0004】図1(a)では、有機層が発光層12とホール輸送層13からなる。透明電極14としては、仕事関数が大きいたんが用いられ、透明電極14からホール輸送層13への良好なホール注入特性を持たせている。金属電極11としては、アルミニウム、マグネシウムあるいはそれらを用いた合金などの仕事関数の小さな金属材料を用い有機層への良好な電子注入性を持たせる。これら電極には、50～200nmの膜厚が用いられる。

【0005】発光層12には、電子輸送性と発光特性を有するアルキノリノール錯体など（代表例は、化1に示すA1q3）が用いられる。また、ホール輸送層13には、例えばビフェニルジアミン誘導体（代表例は、化1に示すα-NPD）など電子供与性を有する材料が用いられる。

【0006】以上の構成をした素子は整流性を示し、金属電極11を陰極に透明電極14を陽極になるように電界を印加すると、金属電極11から電子が発光層12に注入され、透明電極15からはホールが注入される。

【0007】注入されたホールと電子は発光層12内で再結合により励起子が生じ発光する。この時ホール輸送層13は電子のブロッキング層の役割を果たし、発光層12/ホール輸送層13界面の再結合効率が上がり、発光効率が上がる。

【0008】さらに、図1(b)では、図1(a)の金属電極11と発光層12の間に、電子輸送層16が設けられている。発光と電子・ホール輸送を分離して、より効果的なキャリアブロッキング構成にすることで、効率的な発光を行うことができる。電子輸送層16としては、例えば、オキサジアゾール誘導体などを用いることができる。

【0009】これまで、一般に有機EL素子に用いられている発光は、発光中心の分子の一重項励起子から基底状態になるときの蛍光が取り出されている。一方、一重項励起子を經由した蛍光発光を利用するのではなく、三重項励起子を經由したりん光発光を利用する素子の検討がなされている。発表されている代表的な文献は、文献1: Improved energy transfer in electrophosphorescent device (D. F. O'Brienら, Applied Physics Letters Vol 74, No3 p422 (1999))、文献2: Very high-efficiency green organic light-emitting devices based on electrophosphorescence (M. A. Baldoら, Applied Physics Letters Vol 75, No1 p4 (1999))である。

【0010】これらの文献では、図1(c)に示す有機層の4層構成が主に用いられている。それは、陽極側からホール輸送層13、発光層12、励起子拡散防止層17、電子輸送層16からなる。用いられている材料は、化1に示すキャリア輸送材料とりん光発光性材料である。各材料の略称は以下の通りである。

Alq3: アルミキノリノール錯体

α -NPD: N4, N4'-Di-naphthalen-1-yl-N4, N4'-diphenyl-biphenyl-4, 4'-diamine

CBP: 4, 4'-N, N'-dicarbazole-biphenyl

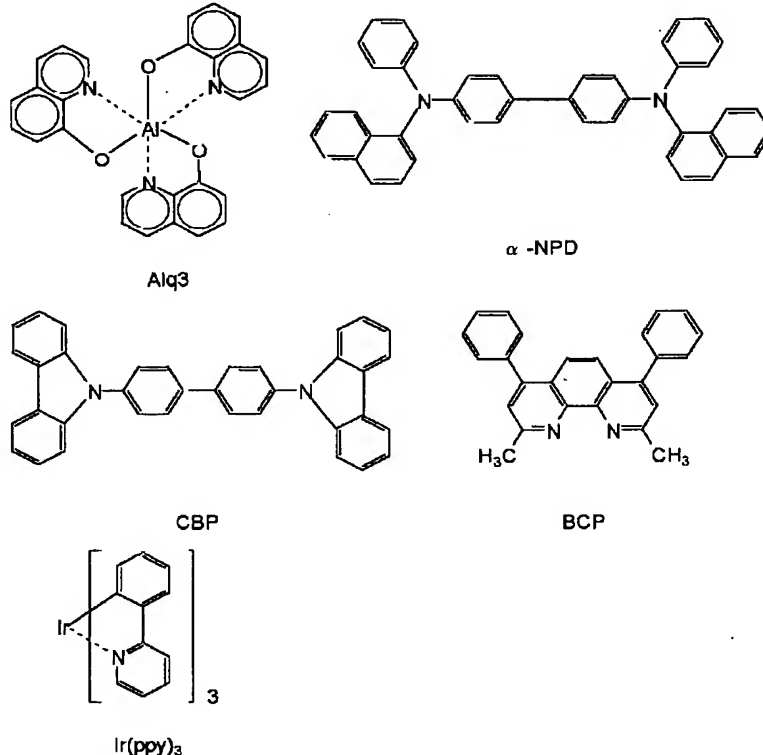
BCP: 2, 9-dimethyl-4, 7-diphenyl-1, 10-phenanthroline

PtOEP: 白金-オクタエチルポルフィリン錯体

Ir(ppy)₃: イリジウム-フェニルピリミジン錯体

【0011】

【化1】



【0012】文献1, 2とも高効率を得られたのは、ホール輸送層13に α -NPD、電子輸送層16にAlq3、励起子拡散防止層17にBCP、発光層12にCBPをホスト材料として、6%程度の濃度で、りん光発光性材料であるPtOEPまたはIr(ppy)₃を混入して構成したものである。

【0013】りん光性発光材料が特に注目されている理由は、原理的に高発光効率が期待できるからである。その理由は、キャリア再結合により生成される励起子は1重項励起子と3重項励起子からなり、その確率は1:3である。これまでの有機EL素子は、1重項励起子から基底状態に遷移する際の蛍光を発光として取り出していたが、原理的にその発光収率は生成された励起子数に対して、25%でありこれが原理的上限であった。しかし、3重項から発生する励起子からのりん光を用いれば、原理的に少なくとも3倍の収率が期待され、さら

に、エネルギー的に高い1重項からの3重項への項間交差による転移を考え合わせれば、原理的には4倍の100%の発光収率が期待できる。

【0014】他に、三重項からの発光を要した文献には、特開平11-329739号公報（有機EL素子及びその製造方法）、特開平11-256148号公報（発光材料およびこれを用いた有機EL素子）、特開平8-319482号公報（有機エレクトロルミネッセント素子）等がある。

【0015】

【発明が解決しようとする課題】現在においても有機化合物を含む層を用いる発光素子（有機EL素子）の長時間の通電による輝度劣化は大きな問題であり、更なる改善が求められている。特にりん光発光を用いた有機EL素子では高発光効率が期待される一方で、通電劣化が深刻な問題となっている。

【0016】そこで、本発明は初期輝度が高く、耐久による輝度劣化が少ない発光素子及び表示装置を提供することを目的とする。

【0017】

【課題を解決するための手段】本発明者等は、上記課題を解決すべく鋭意検討した結果、クロスカップリング反応に由来する不純物が有機EL素子の初期輝度や耐久による輝度低下に大きく影響することを見出し、本発明を完成するに至った。

【0018】即ち、本発明の発光素子は、少なくとも一層の有機化合物層を有する発光素子において、クロスカップリング反応により生じうる不純物の含有量が0.5質量%以下、好ましくは0.3質量%以下、より好ましくは0.1質量%以下である有機化合物層を少なくとも一層有することを特徴とする。

【0019】本発明の発光素子においては、前記不純物を含有する有機化合物層が、発光層、ホール輸送層、電子輸送層、ホール注入層、または励起子拡散防止層であることが好ましい。

【0020】また、前記発光素子がりん光発光を用いた発光素子であることが好ましい。

【0021】また、前記有機化合物層が、一対の電極間に挟持され、該電極間に電圧を印加することにより発光する電界発光素子であることが好ましい。

【0022】更に、本発明の表示装置は、上記発光素子を表示素子として備えたことを特徴とする。

【0023】

【発明の実施の形態】本発明の発光素子は、少なくとも

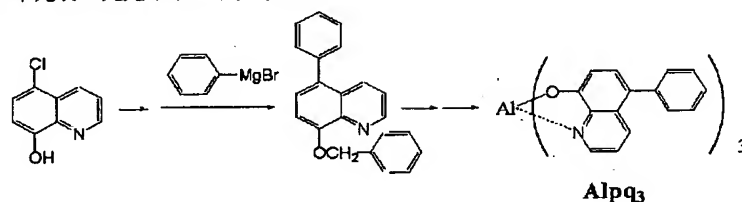
一層の有機化合物層を有する発光素子、好ましくは有機化合物層が一対の電極間に挟持され、該電極間に電圧を印加することにより発光する電界発光素子である。発光素子の層構成としては特に限定されず、図1に示す様な構成が挙げられる。

【0024】また、本発明の発光素子は、クロスカップリング反応により生じうる不純物の含有量が0.5質量%以下、好ましくは0.3質量%以下、より好ましくは0.1質量%以下である有機化合物層を少なくとも一層有する。不純物の含有量が0.5質量%以下であれば、耐久性に優れ、りん光発光を用いた発光素子の場合には、初期特性にも優れる。

【0025】ここで、有機合成におけるクロスカップリング反応とは、異なる反応種の間で共有結合を生成させる反応で、同じ反応種の間で共有結合を生成させるホモカップリング反応と区別される。このクロスカップリング反応の内でも遷移金属触媒(Pd, Ni, Cu, Feなど)を用いた有機金属化合物と有機ハロゲン化合物のクロスカップリング反応、Heck反応、有機ホウ素化合物を用いた鈴木-カップリング反応、Pd触媒を用いたアミノ化反応、Pd触媒を用いたジアリールエーテル合成反応などが種々検討され、各種有機化合物の有力な合成手法となっている。これらの方法は有機EL素子用の材料においても重要な合成手法であり、公知材料の合成例として以下のようなものが挙げられる。

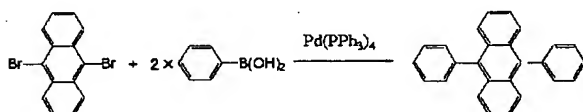
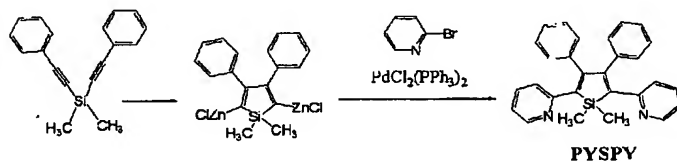
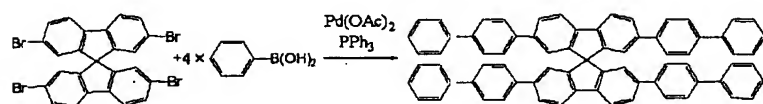
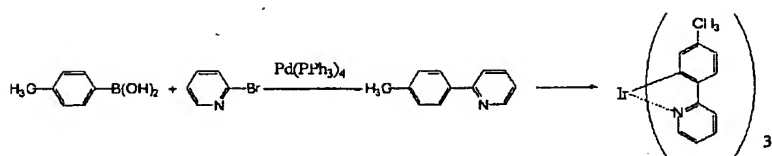
【0026】

【化2】



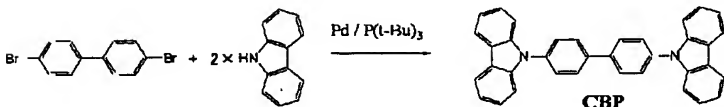
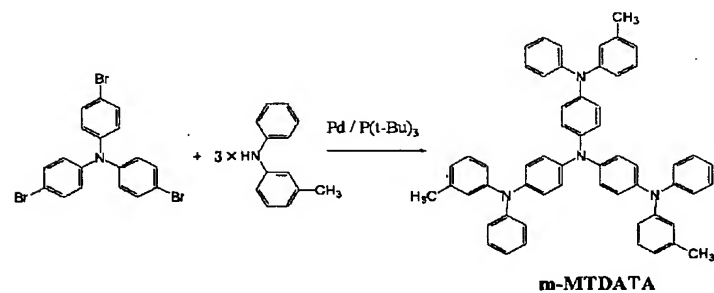
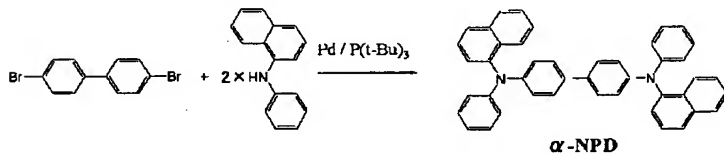
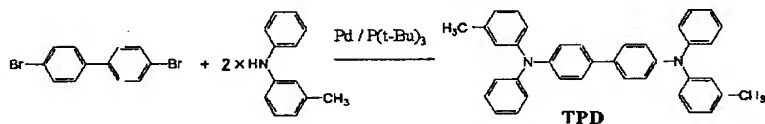
【0027】

【化3】



【0028】

【化4】

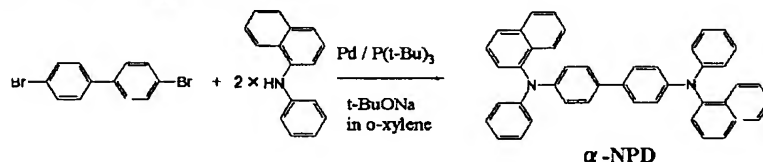


【0029】クロスカップリング反応により生成する目的物以外の不純物としては、同じ反応種の間で結合したホモカップリング体、原料のハロゲン原子や金属原子が水素で置き換わったもの、用いた遷移金属触媒や有機金属化合物に由来する金属を含有する有機化合物などが挙げられる。

【0030】クロスカップリング反応により生じる不純物を含有する有機化合物層は、発光層、ホール輸送層、電子輸送層、ホール注入層、励起子拡散防止層のいずれであってもよく、これらのうち複数であってもよい。

【0031】本発明の高効率・高耐久性の発光素子は、

省エネルギーや高輝度が必要な製品に応用が可能である。応用例としては表示装置・照明装置やプリンターの光源、液晶表示装置のバックライトなどが考えられる。表示装置としては、省エネルギーや高視認性・軽量のフラットパネルディスプレイが可能となる。また、プリンターの光源としては、現在広く用いられているレーザービームプリンターのレーザー光源部を、本発明の発光素子に置き換えることができる。独立にアドレスできる素子をアレイ上に配置し、感光ドラムに所望の露光を行うことで、画像形成する。本発明の素子を用いることで、装置体積を大幅に減少することができる。照明装置やバック



【0035】粗製物の段階で高速液体クロマトグラフィーによりクロスカップリング反応由来の不純物であるビフェニルが2.3質量%含まれていることを確認した。シリカゲルカラムクロマト及び再結晶を繰り返すことにより、高速液体クロマトグラフィーでビフェニルが検出されない精製 α -NPDを得た(検出限界0.05質量%)。この α -NPDを用いて次に示す工程で素子を作成した。

【0036】この素子は図1(a)に示す有機層が2層の素子である。ガラス基板(透明基板15)上に100nmのITO(透明電極14)をパターンニングして、対向する電極面積が3mm²になるようにした。そのITO基板上に、以下の有機層と電極層を10⁻⁴Paの真空チャンバー内で抵抗加熱による真空蒸着を行い、連続膜した。

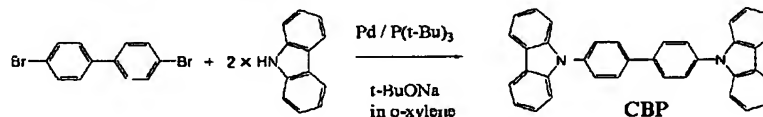
有機層1(ホール輸送層13)(40nm): 精製 α -NPD

有機層2(発光層12)(30nm): Alq3

金属電極層1(15nm): AlLi合金(Li含有量1.8重量%)

金属電極層2(100nm): Al

【0037】ITO側を陽極にAl側を陰極にして電界を印加し、電流値をそれぞれの素子で同じになるように電圧を印加して、輝度の時間変化を測定した。一定の電流量は70mA/cm²とした。素子劣化の原因として酸素や水が問題なので、その要因を除くため真空チャン



【0043】粗製物の段階で高速液体クロマトグラフィーによりクロスカップリング反応由来の不純物であるビ

ライトに関しては、本発明による省エネルギー効果が期待できる。

【0032】

【実施例】以下、実施例により本発明を説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0033】<実施例1>次に示すTetrahedron Lett., 1998, 39, 2367-2370.の方法で α -NPDを合成した。

【0034】

【化5】

バーから取り出し後、乾燥窒素フロー中で上記測定を行った。結果を表1に示す。

【0038】<実施例2~4、比較例1, 2>実施例1の有機層1で、精製 α -NPDに対して表1に示す割合でビフェニルを共蒸着する以外は全く同じ条件で素子を作成し、輝度の時間変化を測定した。結果を表1に示す。

【0039】

【表1】

| | ビフェニル含有量 (質量%) | 輝度半減時間 (hrs) |
|------|-------------------|-----------------|
| 実施例1 | 0 | 900 |
| 実施例2 | 0.1 | 810 |
| 実施例3 | 0.3 | 740 |
| 実施例4 | 0.5 | 670 |
| 比較例1 | 1.0 | 310 |
| 比較例2 | 2.0 | 130 |

【0040】表1から、 α -NPD中のビフェニル含有量が0.5質量%以下の場合に素子の耐久性が特に向上し、0.3質量%, 0.1質量%になるにしたがってさらに向上することが判った。

【0041】<実施例5>次に示すTetrahedron Lett., 1998, 39, 2367-2370.の方法でCBPを合成した。

【0042】

【化6】

フェニルが3.1質量%含まれていることを確認した。シリカゲルカラムクロマト及び再結晶を繰り返すことに

より、高速液体クロマトグラフィーでビフェニルが検出されない精製CBPを得た（検出限界0.05質量％）。このCBPを用いて次に示す工程で素子を作成した。

【0044】この素子は図1（b）に示す有機層が3層の素子である。ガラス基板（透明基板15）上に100nmのITO（透明電極14）をパターンニングして、対向する電極面積が3mm²になるようにした。そのITO基板上に、以下の有機層と電極層を10⁻⁴Paの真空チャンバー内で抵抗加熱による真空蒸着を行い、連続製膜した。

有機層1（ホール輸送層13）（40nm）：実施例1の精製 α -NPD

有機層2（発光層12）（30nm）：精製CBP：Ir（ppy）₃（精製CBPに対し5重量％）

有機層3（電子輸送層16）（30nm）：Alq3

金属電極層1（15nm）：AlLi合金（Li含有量1.8重量％）

金属電極層2（100nm）：Al

【0045】実施例1と同様にして輝度の時間変化を測定した。結果を表2に示す。

【0046】＜実施例6～8、比較例3、4＞実施例5の有機層2で、精製CBPに対して表2に示す割合でビフェニルを共蒸着する以外は全く同じ条件で素子を作成し、輝度の時間変化を測定した。結果を表2に示す。

【0047】

【表2】

| | ビフェニル含有量 (質量%) | 輝度半減時間 (hrs) |
|------|-------------------|-----------------|
| 実施例5 | 0 | 180 |
| 実施例6 | 0.1 | 165 |
| 実施例7 | 0.3 | 155 |
| 実施例8 | 0.5 | 130 |
| 比較例3 | 1.0 | 60 |
| 比較例4 | 2.0 | 35 |

【0048】表2から、CBP中のビフェニル含有量が0.5質量％以下の場合に素子の耐久性能が特に向上し、0.3質量％、0.1質量％になるにしたがってさらに向上することが判った。

【0049】さらに、実施例8と比較例3の素子の初期輝度を比較すると実施例8の素子の方が明らかに高かった。

【0050】以上の結果より、クロスカップリング反応により生じうる不純物が0.5質量％以下、好ましくは0.3質量％以下、より好ましくは0.1質量％以下に低減されている発光素子が通電による輝度低下が小さく、高効率であることが明らかになった。

【0051】

【発明の効果】以上説明のように、本発明によれば、高効率発光で、耐久性に優れ、長い期間高輝度を保つ発光素子及び表示装置を得ることができる。更に、燐光発光素子の場合には、初期特性も改善される。

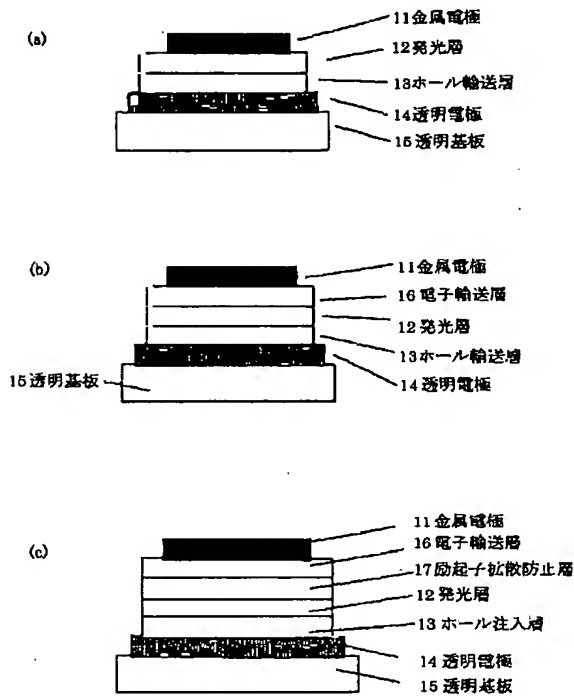
【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の発光素子の一例を示す図である。

【符号の説明】

- 11 金属電極
- 12 発光層
- 13 ホール輸送層
- 14 透明電極
- 15 透明基板
- 16 電子輸送層
- 17 励起子拡散防止層

【図1】



フロントページの続き

(72)発明者 岡田 伸二郎
東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤ
ノン株式会社内

(72)発明者 三浦 聖志
東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤ
ノン株式会社内

(72)発明者 森山 孝志
東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤ
ノン株式会社内

(72)発明者 鎌谷 淳
東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤ
ノン株式会社内

(72)発明者 古郡 学
東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤ
ノン株式会社内

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB11 CA01 CB01
DA01 DB03 EB00